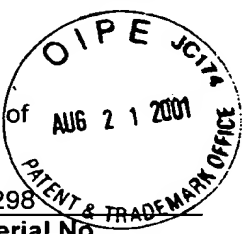


#4
IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re PATENT APPLICATION of
Inventor(s): NIJENHUIS



Appln. No.: 09 | 882,298
Series Code ↑ | ↑ Serial No.

Group Art Unit: 1711

Filed: June 18, 2001

Examiner: Not Assigned

Title: INTRINSICALLY GEL-FREE, RANDOMLY BRANCHED
POLYAMIDE

Atty. Dkt. P 281475

9462US/CNT1

M#

Client Ref

Date: August 21, 2001

**SUBMISSION OF PRIORITY
DOCUMENT IN ACCORDANCE
WITH THE REQUIREMENTS OF RULE 55**

Hon. Asst Commissioner of Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

Please accept the enclosed certified copy(ies) of the respective foreign application(s) listed below for which benefit under 35 U.S.C. 119/365 has been previously claimed in the subject application and if not is hereby claimed.

<u>Application No.</u>	<u>Country of Origin</u>	<u>Filed</u>
1010819	the Netherlands	December 16, 1998

Respectfully submitted,

Pillsbury Winthrop LLP
Intellectual Property Group

1600 Tysons Boulevard

McLean, VA 22102
Tel: (703) 905-2000
Atty/Sec: PLS/cdw

By Atty: Paul L. Sharer

Sig: 

Reg. No. 36004

Fax: (703) 905-2500
Tel: (703) 905-2180

KONINKRIJK DER



NEDERLANDEN

Bureau voor de Industriële Eigendom



This is to declare that in the Netherlands on December 16, 1998 under No. 1010819,
in the name of:

DSM N.V.

in Heerlen

a patent application was filed for:

"Intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide",

("Intrinsically gel-free, randomly branched polyamide")

and that the documents attached hereto correspond with the originally filed documents.

Rijswijk, July 10, 2001.

In the name of the president of the Netherlands Industrial Property Office

A handwritten signature in black ink, appearing to be 'N.A. Oudhof'.

N.A. Oudhof

UITTREKSEL

De uitvinding betreft een random vertakt
5 polyamide dat tenminste is opgebouwd uit eenheden
afgeleid van:

1. AB-monomeren,
2. tenminste één verbinding I, zijnde een carbonzuur
(A_v) met functionaliteit $v \geq 2$ of een amine (B_w) met
10 functionaliteit $w \geq 2$,
3. tenminste één verbinding II, zijnde een carbonzuur
(A_v) met functionaliteit $v \geq 3$ of een amine (B_w) met
functionaliteit $w \geq 3$, waarbij verbinding II een
carbonzuur is indien verbinding I een amine is of
15 waarbij verbinding II een amine is indien verbinding
I een carbonzuur en waarbij de hoeveelheden van alle
eenheden afgeleid van carbonzuren en aminen in het
polyamide voldoen aan voorwaarden zoals genoemd in
conclusie 1.

20 Het random vertakt polyamide heeft een
zodanige samenstelling dat het geen vernet polyamide
(en dus ook geen gels) kan vormen, in het bijzonder
zowel tijdens de prepolymerisatie, de polymerisatie, de
nakondensatie, de verwerking en de opslag van het
25 random vertakt polyamide en dit bij een verscheidenheid
van omgevingsfactoren, bijvoorbeeld bij verhoogde druk
en temperatuur. Het polyamide is uitermate geschikt
voor de produktie van folie, in het bijzonder voor
vlakfolie.

30

INTRINSIEK GELVRIJ RANDOM VERTAKT POLYAMIDE

De uitvinding betreft een random vertakt polyamide dat tenminste is opgebouwd uit eenheden
5 afgeleid van:

1. AB-monomeren,
2. tenminste één verbinding I, zijnde een carbonzuur
(A_v) met functionaliteit $v \geq 2$ of een amine (B_w) met
functionaliteit $w \geq 2$,
- 10 3. tenminste één verbinding II, zijnde een carbonzuur
(A_v) met functionaliteit $v \geq 3$ of een amine (B_w) met
functionaliteit $w \geq 3$, waarbij verbinding II een
carbonzuur is indien verbinding I een amine is of
waarbij verbinding II een amine is indien
15 verbinding I een carbonzuur is.

Een dergelijk random vertakt polyamide is bekend uit EP-B1-345.648. Echter, een probleem bij het random vertakt polyamide volgens EP-B1-345.648 is dat het random vertakt polyamide niet intrinsiek gelvrij is
20 zodat het random vertakt polyamide bijvoorbeeld wel als een gelvrije smelt kan verkregen worden, doch dat bij verdere verwerking van het random vertakt polyamide alsnog gelvorming kan optreden. In het kader van deze
aanvraag wordt onder gelvorming verstaan een proces
25 waarbij in een polymeer materiaal een heterogeen netwerk gevormd wordt. Gelvorming geeft o.a. aanleiding tot het vormen van zichtbare inhomogeniteiten ("gels") bij de verwerking van het random vertakt polyamide tot bijvoorbeeld folies en tot een verslechtering van de
30 mechanische eigenschappen van polyamide voorwerpen, verkregen uit het random vertakt polyamide. Ook is

bekend dat random vertakt polyamide bij de verwerking in apparatuur waar lokale oververhitting kan optreden of waar polyamide materiaal zich kan ophopen, bijvoorbeeld in extruders en mengers, sterk vernet
5 polyamide kan bevatten.

Het is gewenst intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide ter beschikking te hebben. Met "intrinsiek gelvrij" wordt in het kader van deze aanvraag bedoeld dat het random vertakt polyamide een
10 zodanige samenstelling heeft dat het geen vernet polyamide (en dus ook geen gels) kan vormen, in het bijzonder zowel tijdens de prepolymerisatie, de polymerisatie, de nakondensatie, de verwerking, bijvoorbeeld tot folies en de opslag van het random
15 vertakt polyamide en dit bij een verscheidenheid van omgevingsfactoren, bijvoorbeeld bij verhoogde druk en temperatuur.

Ofschoon het vermijden van gelvorming in polymere materialen in de praktijk veel aandacht heeft,
20 is zowel een structurele en systematische aanpak als een afdoende oplossing voor het probleem van het verkrijgen van intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide op van AB-monomeren tot nu toe niet bekend.

De uitvinders hebben zich tot doel gesteld
25 het verschaffen van een intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide dat tenminste is opgebouwd uit eenheden afgeleid van :

1. AB-monomeren,
2. tenminste één verbinding I, zijnde een carbonzuur
30 (A_v) met functionaliteit $v \geq 2$ of een amine (B_w) met functionaliteit $w \geq 2$,
3. tenminste één verbinding II, zijnde een carbonzuur (A_v) met functionaliteit $v \geq 3$ of een amine (B_w) met

functionaliteit $w \geq 3$, waarbij verbinding II een carbonzuur is indien verbinding I een amine is of verbinding II een amine is indien verbinding I een carbonzuur is.

5 Dit doel wordt bereikt wanneer de hoeveelheden van alle eenheden afgeleid van carbonzuren en aminen in het polyamide voldoen aan formule 1

$$P < 1 / [(F_A - 1) \cdot (F_B - 1)] \quad (1)$$

10

waarin :

$$P = [\sum (n_i \cdot f_i)]_X / [\sum (n_i \cdot f_i)]_Y \quad (2)$$

15 waarin $P < 1$ en hetzij $X = A$ en $Y = B$, hetzij $X = B$ en $Y = A$ en

$$F = \sum (n_i \cdot f_i^2) / \sum (n_i \cdot f_i) \quad (3)$$

20 voor respectievelijk alle carbonzuren (F_A) en alle aminen (F_B), waarin f_i de functionaliteit is van het carbonzuur (v) of amine (w) i , n_i het aantal mol van het carbonzuur of amine en de sommatie wordt uitgevoerd over alle eenheden afgeleid van carbonzuren en aminen
25 in het polyamide.

In het kader van deze uitvinding wordt onder AB-monomeer verstaan een monomeer dat zowel een carbonzure groep (A) als een aminegroep (B) bezit.

30 In het kader van deze aanvraag wordt onder verbinding I en verbinding II ook mengsels van meerdere carbonzuren met dezelfde functionaliteit of mengsels van meerdere aminen met dezelfde functionaliteit verstaan.

In het kader van deze aanvraag wordt onder carbonzuur, respectievelijk amine verstaan een verbinding die naast één of meer carbonzure groepen geen aminegroepen draagt en vice-versa. Hieruit volgt
5 dat eenheden, afgeleid van carbonzuren, respectievelijk aminen in het polymeer een chemische samenstelling hebben die verschilt van die van de eenheden, afgeleid van de AB-monomeren. Met carbonzure groep wordt in het kader van deze aanvraag verstaan een groep die een
10 covalente binding kan aangaan met een aminegroep, bijvoorbeeld -COOH, -COHal (Hal=halogeen), -CO₂R met R zijnde een alkylrest met 1 to 20 koolstofatomen en -SO₂Hal (Hal =Halogeen).

In het kader van deze aanvraag wordt met
15 functionaliteit bedoeld het aantal functionele groepen in respectievelijk het carbonzuur of het amine, dat in het random vertakt polyamide een binding kan aangaan met andere carbonzuren, aminen of AB-monomeren. Een functionele groep die deze binding niet kan aangaan,
20 bijvoorbeeld een sterisch gehinderde aminegroep of een aromatische aminegroep, wordt als functionele groep in het bepalen van de functionaliteit niet meegeteld. Eveneens wordt de functionaliteit gelijk aan 1 gesteld in het geval twee functionele groepen op een verbinding
25 beiden in een enkele binding met een derde functionele groep betrokken worden, bijvoorbeeld twee zich dicht naast elkaar bevindende COOH-groepen die een imide-binding aangaan met een amine, bijvoorbeeld in de verbinding ortho-dicarboxybenzeen.

30 Bij voorkeur is de functionaliteit v of w van verbinding I te kiezen uit 2, 3, 4, 5 en 6. Met meer voorkeur is de functionaliteit van verbinding I gelijk aan 2. Bij voorkeur is de functionaliteit v of w van verbinding II te kiezen uit 3, 4, 5 en 6. Met meer

voorkeur is de functionaliteit verbinding II gelijk aan 3.

Als AB-monomeren komen in aanmerking alle AB-monomeren die voor de productie van polyamiden
5 kunnen gebruikt worden, in het bijzonder α,ω -aminozuren en/of lactamen, bijvoorbeeld caprolactam, laurinelactam en dodecalactam alsmede de overeenkomstige aminozuren en aromatische aminozuren bijvoorbeeld p-(aminomethyl)-benzoëzuur. Bij voorkeur is het lactam ϵ -caprolactam.

10 Als carbonzuren (A_v) komen bij voorkeur in aanmerking difunctionele carbonzuren, bijvoorbeeld adipinezuur, dodecaandicarbonzuur, isoftaalzuur en tereftaalzuur en trifunctionele carbonzuren, bijvoorbeeld 1,3,5-tris(capronzuur)melamine,
15 trimesinezuur en trimere vetzuren met 50-60 koolstofatomen alsmede esters en anhydriden van genoemde carbonzuren. Bij voorkeur is het difunctioneel carbonzuur tereftaalzuur. Bij voorkeur is het trifunctioneel carbonzuur 1,3,5-
20 tris(capronzuur)melamine (TCAM) of trimesinezuur.

Als aminen (B_w) komen bij voorkeur in aanmerking difunctionele aminen, bijvoorbeeld diaminobutaan, diaminohexaan, diaminododecaan, cyclische aminen, bijvoorbeeld 1,4-diaminocyclohexaan,
25 4,4'-diaminobicyclohexylamine, 1,3- en 1,4-xylyleen diamine en trifunctionele aminen, bijvoorbeeld trisaminononaan en bis(hexamethyleen triamine). Bij voorkeur is het difunctioneel amine 1,6-hexamethyleendiamine. Bij voorkeur is het
30 trifunctioneel amine bis(hexamethyleen triamine).

Tevens kunnen naast de eenheden afgeleid van verbindingen I en II volgens de uitvinding nog andere eenheden afgeleid van carbonzuren en aminen

aanwezig zijn, bijvoorbeeld monofunctionele carbonzuren en aminen (ketenstoppers).

Ofschoon het doel van de uitvinding volgens EP-B1-345.648 niet het doel is van onderhavige uitvinding, noch de maatregelen volgens onderhavige uitvinding noemt, worden in genoemde publicatie, naast een aantal random vertakte polyamiden die niet voldoen aan de maatregelen volgens onderhavige uitvinding, ook een aantal random vertakte polyamiden genoemd die toevalligerwijze voldoen aan de maatregelen volgens de uitvinding. Deze random vertakte polyamiden zijn uitgesloten van de aanvraag, met name de random vertakte polyamiden, die opgebouwd zijn uit eenheden afgeleid van carbonzuren (A_v) met functionaliteit v en aminen (B_w) met functionaliteit w , in de volgende hoeveelheden (in $\mu\text{mol/gram}$ polyamide):

- B_1 (20), B_3 (60) en A_2 (20)
- B_1 (10), B_3 (60) en A_2 (30)
- B_1 (120), B_2 (30) en A_3 (60)
- 20 - B_1 (150), B_2 (30) en A_3 (70)
- B_1 (170), B_3 (30), A_2 (60) en A_3 (60)

Het intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide volgens de uitvinding kan met voor de vakman bekende werkwijzen worden geproduceerd, zowel via een batchproces als via een continu-proces. Volgens een eerste uitvoeringsvorm worden alle AB-monomeren, carbonzuren en aminen in hoeveelheden volgens de uitvinding gepolymeriseerd in een reactor bij geschikte druk en temperatuur. Volgens een tweede uitvoeringsvorm worden de carbonzuren en aminen toegevoegd aan een smelt van een polyamide dat is opgebouwd uit eenheden afgeleid van AB-monomeren.

Het gelvrij random vertakt polyamide volgens de uitvinding kan tevens de gebruikelijke additieven bevatten, bijvoorbeeld vlamdovers, vulstoffen, losmiddelen, glijmiddelen en kleurstoffen.

5 Het intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide volgens de uitvinding is uitstekend geschikt voor de productie van vezel, folie, schuimen en vormdelen. In het bijzonder is het intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide volgens de uitvinding
10 uitstekend geschikt voor de productie van dunne folie, in het bijzonder vlakfolie. De uitvinders hebben vastgesteld dat in genoemde dunne folie, verkregen met het polyamide volgens de uitvinding geen gels konden worden waargenomen. Een verrassend voordeel van het
15 polyamide volgens de uitvinding is ook dat bij de produktie van vlakfolie geen of nauwelijks insnoering ("neck-in") optreedt. Insnoering is de afname van de verhouding van de foliebreedte versus de spleetbreedte tijdens het filmvormingsproces. Dit verrassend voordeel
20 laat toe op eenvoudige wijze folies te vormen zonder de bekende bijkomende maatregelen om insnoering te voorkomen, bijvoorbeeld het afkoelen van de folieranden tijdens het filmvormingsproces.

De uitvinding heeft derhalve ook betrekking
25 op een werkwijze voor de productie van folie verkregen uit het polyamide volgens de uitvinding, alsmede op de folie verkregen met het polyamide volgens de uitvinding.

De uitvinding zal nu worden toegelicht aan
30 de hand van voorbeelden zonder echter daartoe te worden beperkt.

Voorbeelden

Voorbeeld I-VIII : Grafische uitwerking van het gelvrije concentratiegebied.

5 Formules (1) - (3) werden voor een aantal combinaties van carbonzuren en aminen (Tabel 1) verder uitgewerkt in een grafische voorstelling voor een combinatie van drie carbonzuren of aminen (Figuren 1-8), zonder de uitvinding echter tot de gegeven
10 voorbeelden te beperken. In de figuren werd weergegeven welke hoeveelheden (uitgedrukt als molfractie) van eenheden afgeleid carbonzuren en aminen een intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide kan bevatten. In het concentratie-gebied, aangegeven door de kleine cirkels
15 is het random vertakt polyamide niet-intrinsiek gelvrij. Hierbij is het opmerkelijk dat het intrinsiek gelvrij karakter van een random vertakt polyamide niet afhankelijk is van de absolute hoeveelheid eenheden, afgeleid van een carbonzuur of amine, doch slechts van
20 de relatieve verhouding van de eenheden, afgeleid van de carbonzuren en aminen. Dit betekent ook dat het intrinsiek gelvrij karakter van een random vertakt polyamide volgens de uitvinding niet afhankelijk is van de hoeveelheid eenheden afgeleid van AB-monomeren. Een
25 derde opmerkelijk feit is dat in het polyamide volgens de uitvinding alle eenheden, afgeleid van carbonzuren door aminen kunnen vervangen worden en omgekeerd zonder dat dit het gelvrije karakter van een polyamide verandert. Bijvoorbeeld is het concentratiegebied voor
30 de eenheden afgeleid van carbonzuren A_1 en A_3 en het amine B_2 hetzelfde als voor eenheden afgeleid van aminen B_1 en B_3 en het carbonzuur A_2 (Figuur 1).

Tabel 1: Combinaties van carbonzuren en aminen.

Voorbeeld	Carbonzuren	Aminen	Figuur
I	A ₁ , A ₃	B ₂	1
II	A ₁ , A ₃	B ₃	2
III	A ₁ , A ₄	B ₂	3
IV	A ₁ , A ₄	B ₃	4
V	A ₁ , A ₅	B ₂	5
VI	A ₁ , A ₅	B ₃	6
VII	A ₁ , A ₆	B ₂	7
VIII	A ₁ , A ₆	B ₃	8

Bereiding van gelvrij random vertakte polyamiden

5 Werkwijze 1

100 gram ϵ -caprolactam, 1 gram ϵ -aminocapronzuur, 2 gram water en verschillende hoeveelheden carbonzuren en aminen (zie Tabel 2 voor de molverhoudingen) werden bij 90°C in een glazen buis gemengd. De buis was voorzien van een terugvloeiakoeler en werd voor gebruik 3 maal gespoeld met vacuum/stikstof, waarna het reactiemengsel onder stikstofatmosfeer werd opgewarmd tot 260-270°C en vervolgens gedurende 11 uur op deze temperatuur werd gehouden. Na afkoelen werd de buis gebroken en de inhoud gemalen en 3 maal gewassen in kokend water om niet gereageerd caprolactam en laag moleculaire oligomeren te verwijderen en vervolgens gedroogd gedurende 24 uur bij 80°C onder vacuum. Het verkregen polymeer was wit. Aan de gewassen en gedroogde polymeren werden een aantal analyses uitgevoerd zoals smeltviscositeit en oplosviscositeit. De smeltviscositeit werd bepaald met een Rheometrix 800 plaat/plaat apparatuur als zogenaamde nulviscositeit

bij 230°C, m.a.w. de dynamische smeltviscositeit bij afschuifkracht 0. De intrinsieke viscositeit werd bepaald via een driepuntsmeting (3, 4 en 5 g/l) in 85% mierzuur bij 25°C. Alle polymeren in Tabel 1 werden op
5 deze manier bereid.

Werkwijze 2

In een 5 ltr. reactor werd 3,5 kg ϵ -caprolactam, 35 gram ϵ -aminocapronzuur, 70 gram water
10 en de verschillende hoeveelheden additieven bij elkaar gevoegd. De temperatuur van het reactiemengsel werd gedurende 5 uur op 90°C gehouden, waarna het mengsel in ongeveer 2 uur is opgewarmd naar 275°C en gedurende 5 uur bij die temperatuur gehouden is. Vervolgens werd de
15 temperatuur in 60 min. teruggebracht naar 240°C en daar voor 3.5 uur gehouden. Hierna werd de reactorinhoud onder stikstof afgetapt bij een overdruk van 1 bar. De uit de reactor stromende polymeerdraad werd in ijswater gekoeld en in korrels gehakt, die bij 100°C met water
20 werden gewassen en vervolgens gedroogd.

Nacondensatie:

Het polymeer, verkregen met de werkwijzen 1 en 2 is gedurende 10 uur nagecondenseerd bij 190°C
25 onder vacuum en met een stikstoflek.

Voorbeelden IX-XXXII

Met werkwijze 1 werden een aantal polyamiden bereid, waarvan de samenstellingen vermeld
30 staan in Tabel 2. Bij alle polyamiden werd geen vernetting vastgesteld tijdens of na de polymerisatie.

Tabel 2: Intrinsiek gelvrije polyamide samenstellingen
(hoeveelheden in mol).

Ex.	A ₁	B ₁	A ₂	B ₂	A ₃	B ₃	AB-monomeer
IX	1	-	-	0,25	0,25	-	300
X	1	-	-	0,5	0,5	-	300
XI	1	-	-	0,75	0,75	-	300
XII	1	-	-	1	1	-	300
XIII	1	-	-	2	2	-	300
XIV	-	1	0,25	-	-	0,25	300
XV	-	1	0,5	-	-	0,5	300
XVI	-	1	1	-	-	1	300
XVII	-	1	2	-	-	2	300
XVIII	1	1,25	-	0,25	0,25	-	300
XIX	1	1,5	-	0,5	0,5	-	300
XX	1	2	-	1	1	-	300
XXI	1	3	-	2	2	-	300
XXII	1	1,5	-	0,5	0,5	-	300
XXIII	0,5	-	-	-	0,5	-	300
XXIV	0,33	-	-	0,67	1,33	-	300
XXV	0,5	-	-	0,5	1	-	300
XXVI	0,6	-	-	0,4	0,8	-	300
XXVII	0,67	-	-	0,33	0,67	-	300
XXVIII	2	-	-	2	1	-	300
XXIX	0,67	-	-	0,67	1	-	300
XXX	0,5	-	-	0,5	1	-	300
XXXI	0,57	-	-	0,29	0,57	-	300
XXXII	1,33	-	-	1,67	1,33	-	300

Verklaring van de afkortingen :

- 5 A₁ : benzoëzuur
 B₁ : hexylamine
 A₂ : adipinezuur
 B₂ : hexamethyleendiamine

A₃ : 1,3,5-tris(capronzuur)melamine

B₃ : bis(hexamethyleen)triamine

AB-monomeer : ε-caprolactam

5 Vergelijkende voorbeelden A-G volgens EP-B1-345.638

Met werkwijze 1 werden een aantal polyamiden bereid, waarvan de samenstellingen vermeld staan in Tabel 3. Bij alle polyamiden werd vernetting vastgesteld tijdens of na de polymerisatie.

Tabel 3 : Vergelijkende voorbeelden volgens EP-B1-345.638.

Vergelijkend Voorbeeld	Voorbeeld volgens EP-B1- 345.638 (Tabel 2)	AB-monomeer	B ₁ (L-252)	B ₃ (N-TEA)	A ₂ (ADS)	A ₃ (TMS)	gel- vorming
A	10	aminolaurinezuur	180	30	-	90	ja
B	11	aminolaurinezuur	190	30	-	92	ja
C	13	aminolaurinezuur	176	28	46	56	ja
D	15	caprolactam	210	30	-	100	ja
E	16	caprolactam	210	30	-	100	ja
F	17	caprolactam	176	28	46	56	ja
G	18	caprolactam	124	20	32	40	ja

Verklaring van de afkortingen :

- L-252 : 3-amino-1-cyclohexyl-aminopropaan
N-TEA : nitrilotriethaanamine
ADS : adipinezuur
5 TMS : trimesinezuur

Mechanische eigenschappen van het polyamide volgens de uitvinding.

- Verrassend is ook gebleken dat het
10 polyamide volgens de uitvinding een hoge
smeltverstrekkkracht (smeltsterkte) combineert met een
hoge mate van verstrekbbaarheid (smeltverstrekgraad) in
vergelijking met niet-vertakt polyamide. Dit is
weergegeven in Figuur 9.

15

CONCLUSIES

1. Intrinsiek gelvrij random vertakt polyamide dat tenminste is opgebouwd uit eenheden afgeleid van:

- 5 1. AB-monomeren,
2. tenminste één verbinding I, zijnde een carbonzuur (A_v) met functionaliteit $v \geq 2$ of een amine (B_w) met functionaliteit $w \geq 2$,
3. tenminste één verbinding II, zijnde een
10 carbonzuur (A_v) met functionaliteit $v \geq 3$ of een amine (B_w) met functionaliteit $w \geq 3$, waarbij verbinding II een carbonzuur is indien verbinding I een amine is of waarbij verbinding II een amine is indien verbinding I een carbonzuur is, met het kenmerk, dat de
15 hoeveelheden eenheden, afgeleid van alle carbonzuren en aminen in het polyamide voldoen aan formule 1

20
$$P < 1 / [(F_A - 1) \cdot (F_B - 1)] \quad (1)$$

waarin:

25
$$P = [\sum (n_i \cdot f_i)]_X / [\sum (n_i \cdot f_i)]_Y \quad (2)$$

waarin $P \leq 1$ en hetzij $X = A$ en $Y = B$, hetzij $X = B$ en $Y = A$ en

30
$$F = \sum (n_i \cdot f_i^2) / \sum (n_i \cdot f_i) \quad (3)$$

voor respectievelijk alle carbonzuren (F_A) en aminen (F_B), waarin f_i de functionaliteit is van een carbonzuur (v) of amine (w) i , n_i het aantal

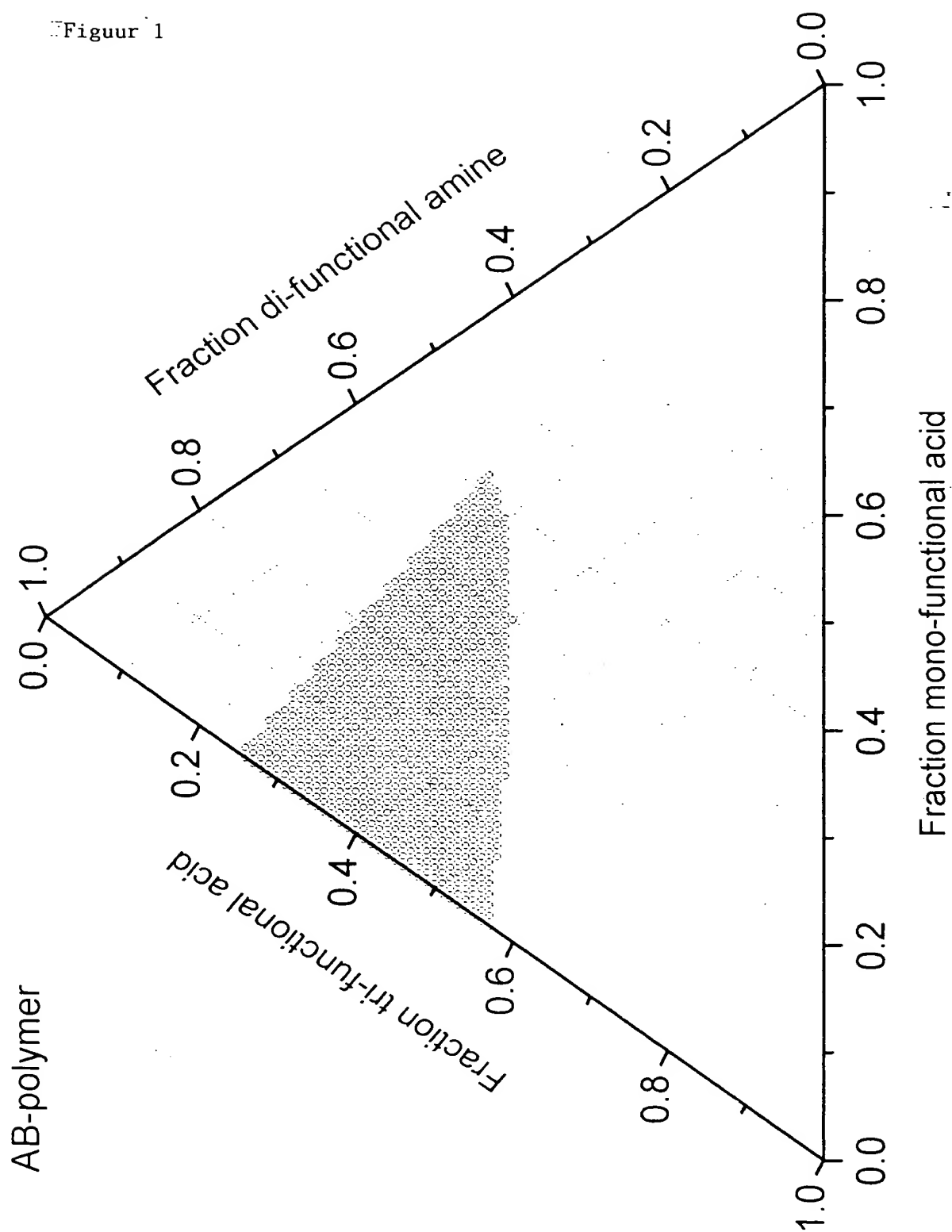
mol van een carbonzuur of amine en de sommatie wordt uitgevoerd over alle eenheden, afgeleid van carbonzuren en aminen in het polyamide;

uitgezonderd:

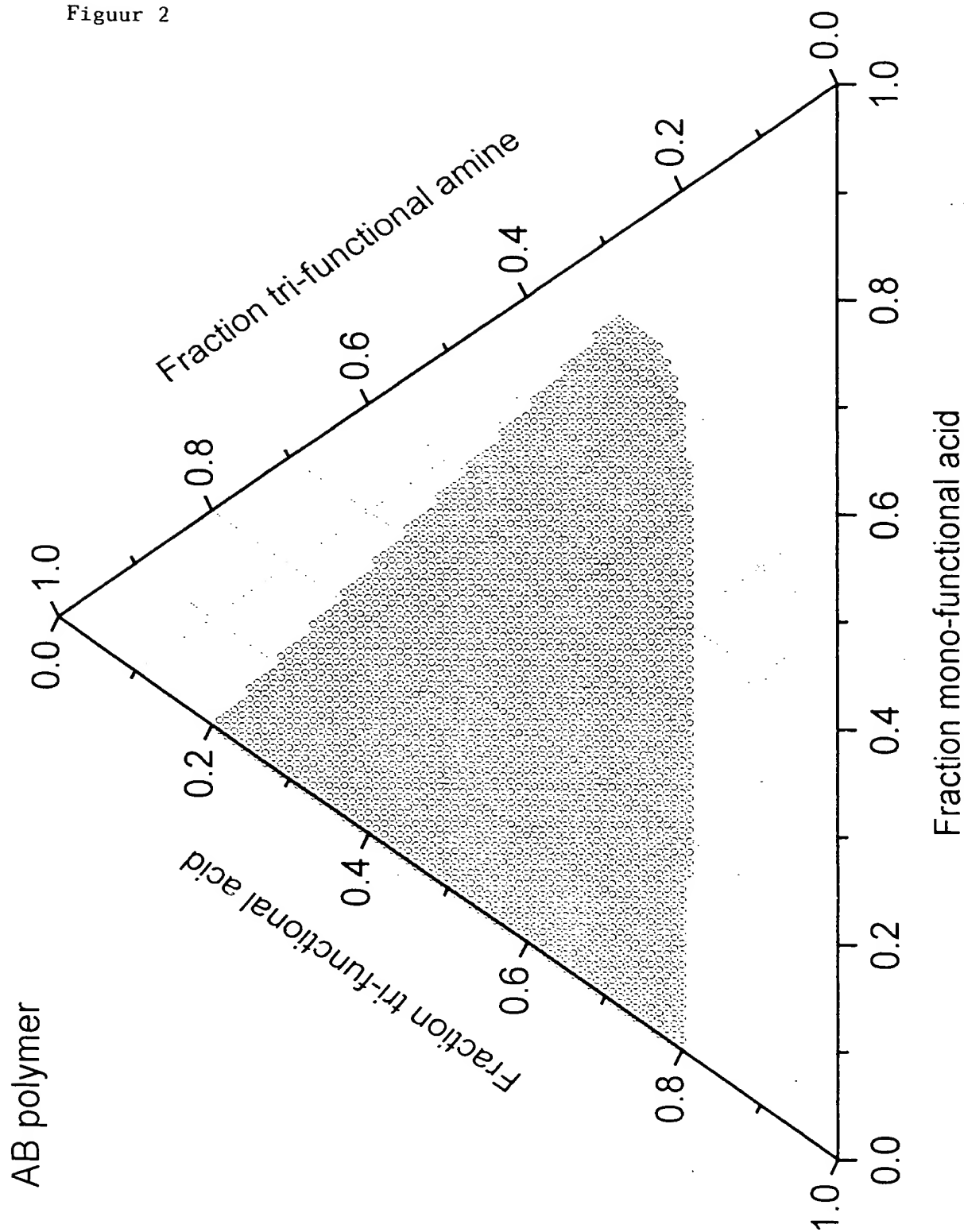
- 5 random vertakte polyamiden, die omvatten eenheden afgeleid van carbonzuren (A_v) met functionaliteit v en aminen (B_w) met functionaliteit w , in de volgende hoeveelheden (in $\mu\text{mol/gram}$ polyamide):
- 10 - B_1 (20), B_3 (60) en A_2 (20)
- B_1 (10), B_3 (60) en A_2 (30)
- B_1 (120), B_2 (30) en A_3 (60)
- B_1 (150), B_2 (30) en A_3 (70)
- B_1 (170), B_3 (30), A_2 (60) en A_3 (60).
2. Polyamide volgens conclusie 1, met het kenmerk,
15 dat de functionaliteit van verbinding I te kiezen is uit 2, 3, 4, 5 en 6 en de functionaliteit van verbinding II te kiezen is uit 3, 4, 5 en 6.
3. Polyamide volgens één der conclusies 1-2, met het kenmerk, dat de functionaliteit van verbinding I
20 gelijk is aan 2 en de functionaliteit verbinding II gelijk is aan 3.
4. Polyamide volgens conclusie 3, met het kenmerk, dat tevens tenminste een eenheid aanwezig is, afgeleid van monofunctioneel carbonzuur of amine.
- 25 5. Polyamide volgens één der conclusies 3-4, met het kenmerk, dat verbinding I gekozen wordt uit de groep van tereftaalzuur en 1,6-hexamethyleen-diamine.
6. Polyamide volgens één der conclusies 3-5, met het kenmerk, dat verbinding II gekozen wordt uit de
30 groep van 1,3,5-tris(capronzuur)melamine, trimesinezuur en bis(hexamethyleen triamine).

7. Polyamide volgens één der conclusies 1-6, met het kenmerk, dat het AB-monomeer een α,ω -aminozuur en/of een lactam is.
- 5 8. Polyamide volgens conclusie 7, met het kenmerk, dat het lactam ϵ -caprolactam is.
9. Werkwijze voor de bereiding van een polyamide folie, met het kenmerk, dat als polyamide een polyamide gekozen wordt volgens een der conclusies 1-8.
- 10 10. Vezel, folie, schuim of vormdeel, verkregen uit een polyamide volgens een der conclusies 1-8.
11. Vlakfolie, verkregen uit een polyamide volgens een der conclusies 1-8.
12. Polyamide zoals beschreven en toegelicht aan de hand van de voorbeelden.
- 15

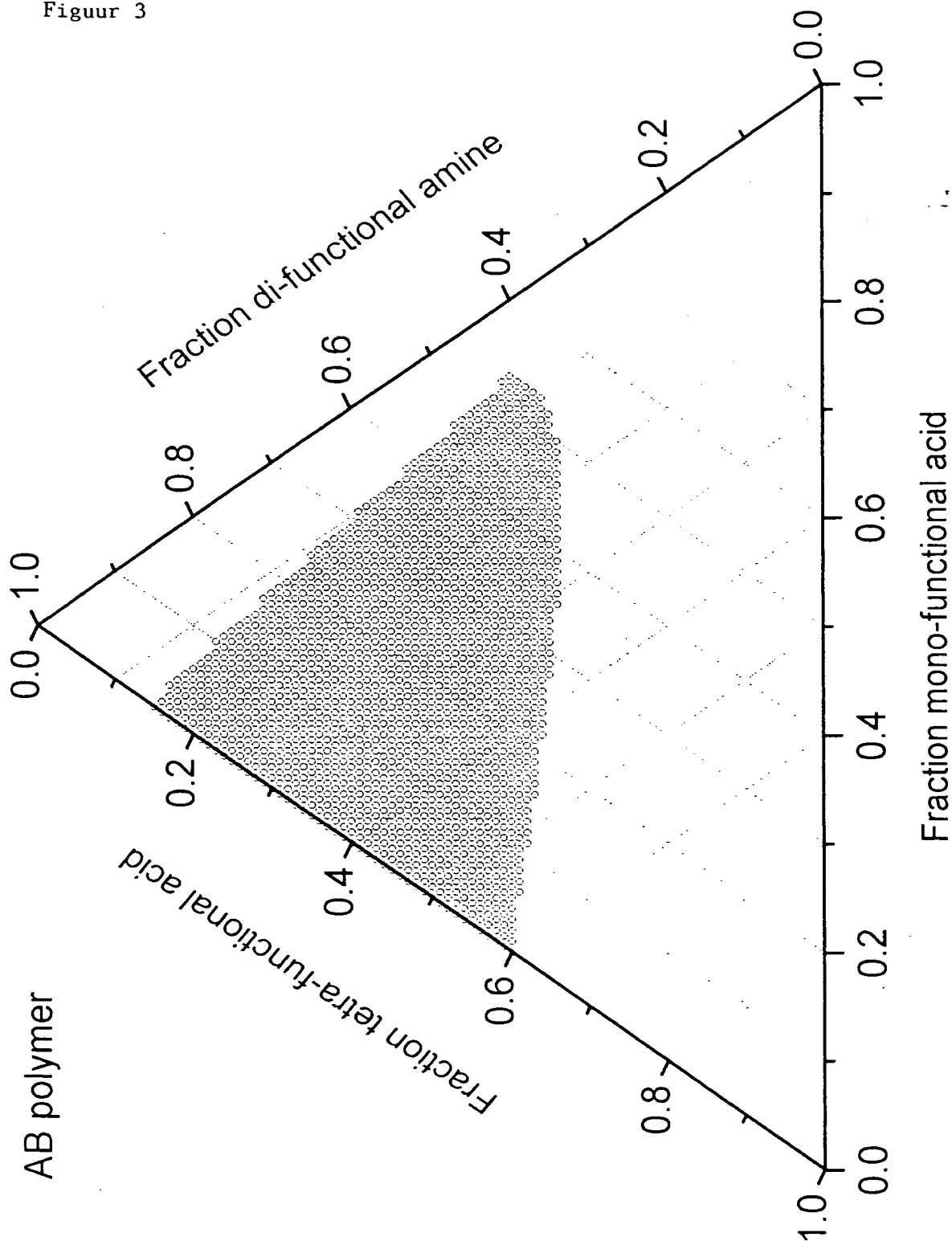
Figuur 1



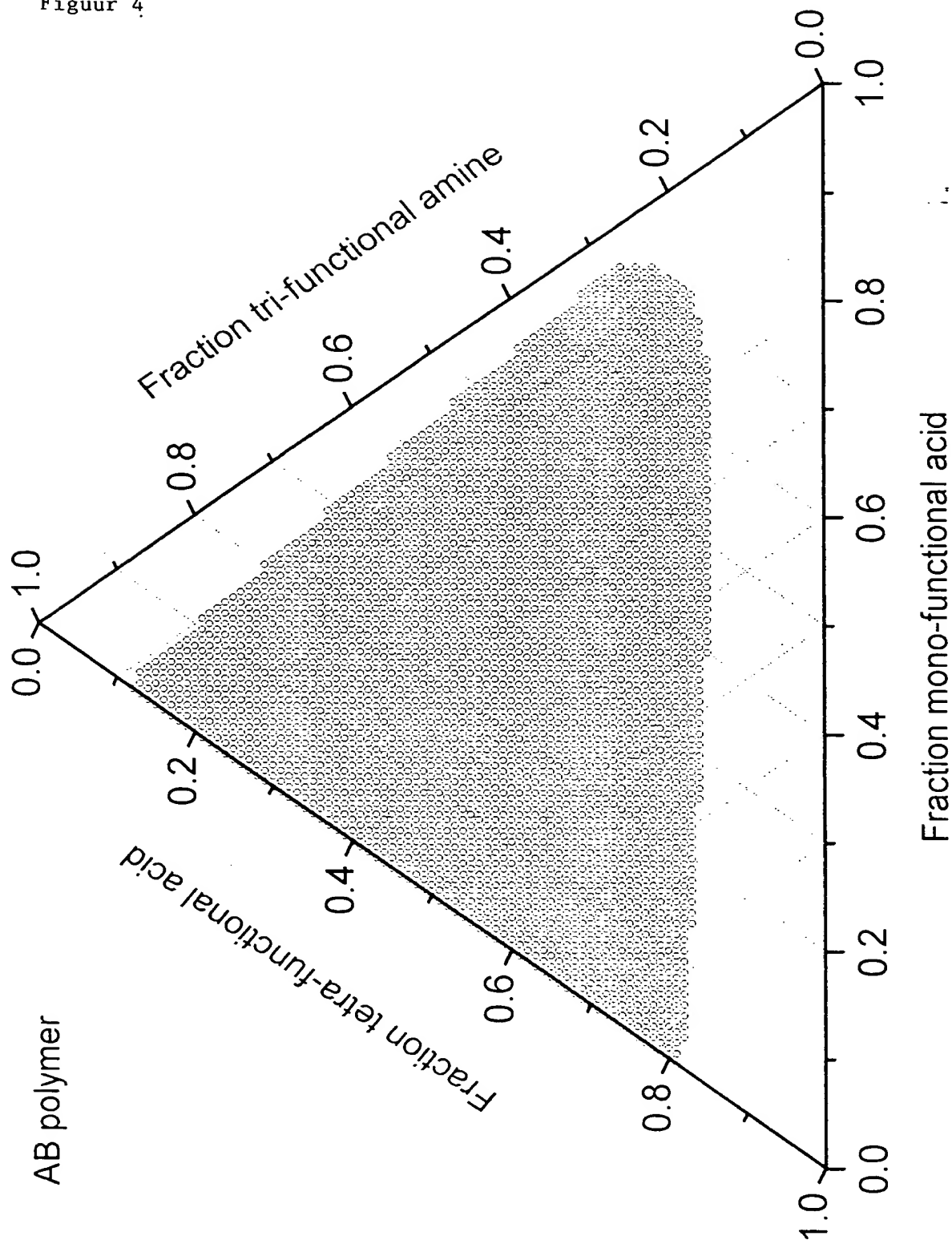
Figuur 2



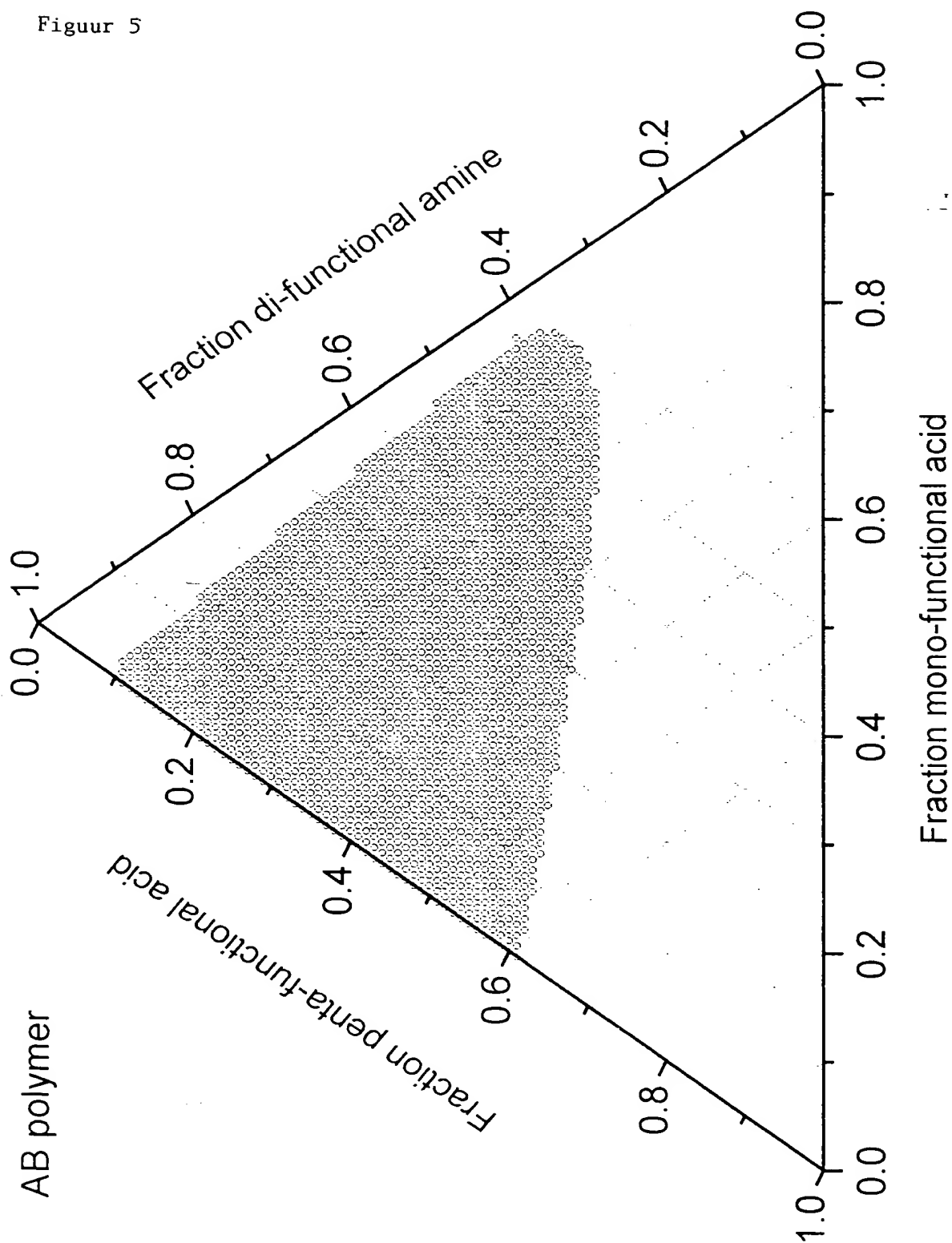
Figuur 3



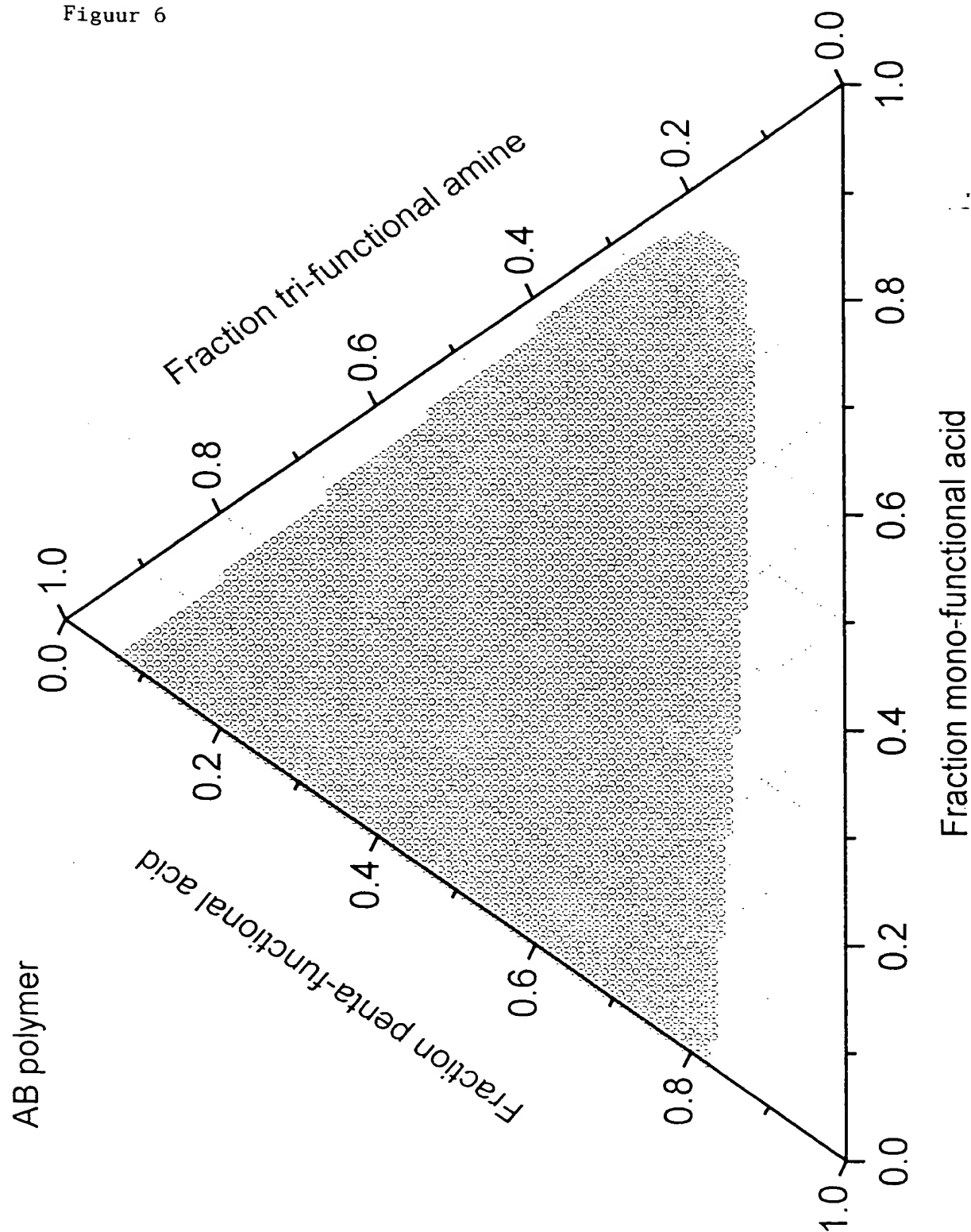
Figuur 4



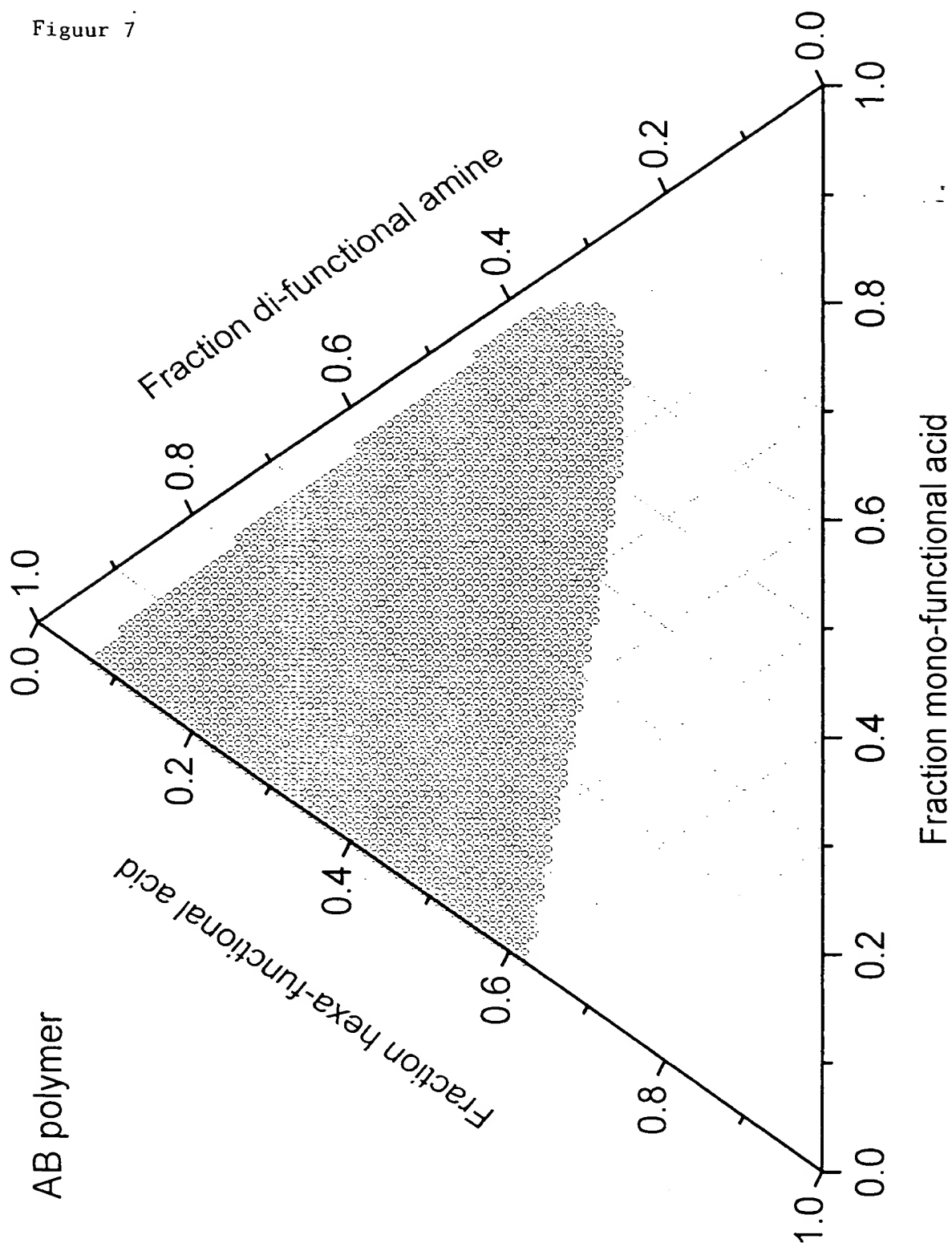
Figuur 5



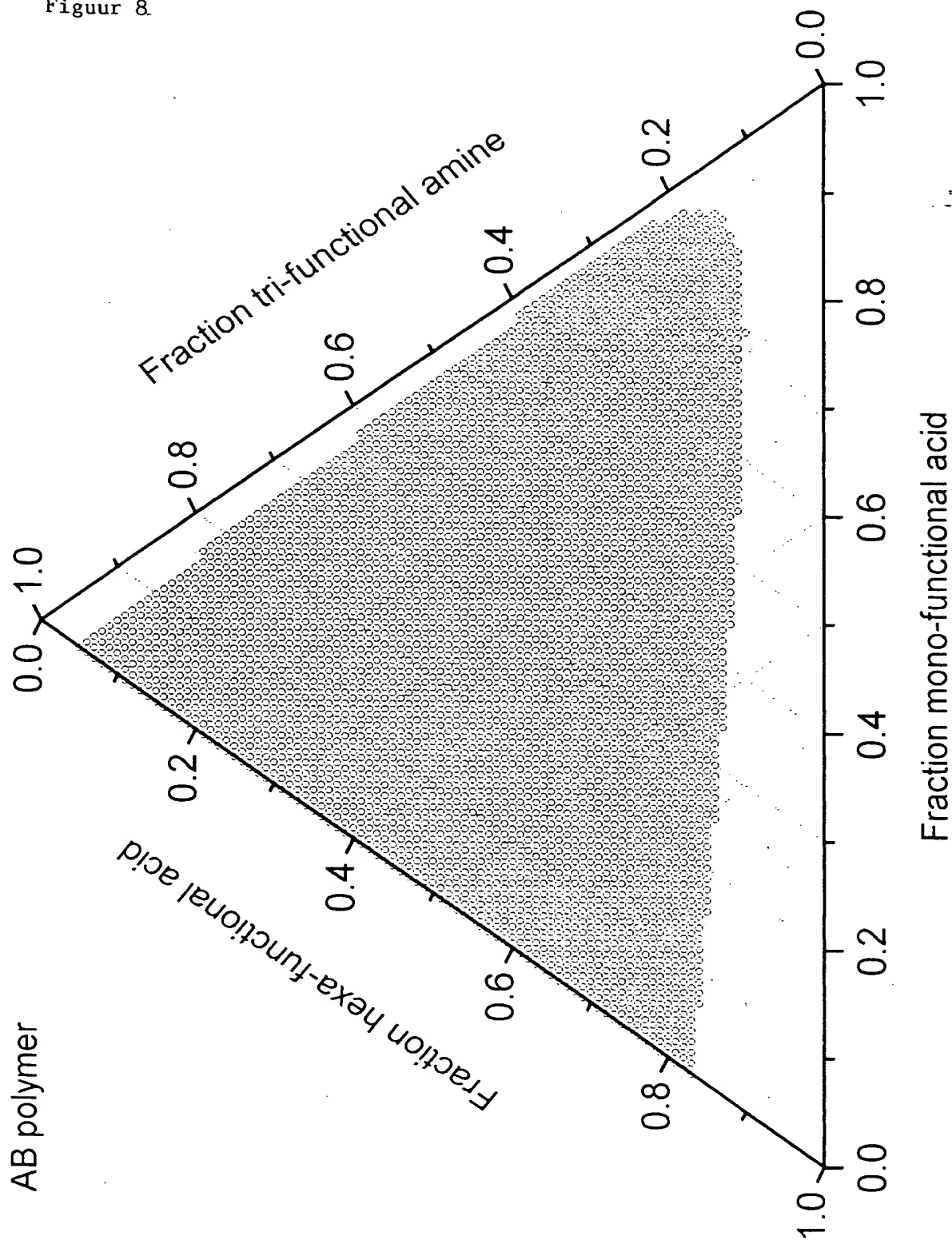
Figuur 6



Figuur 7

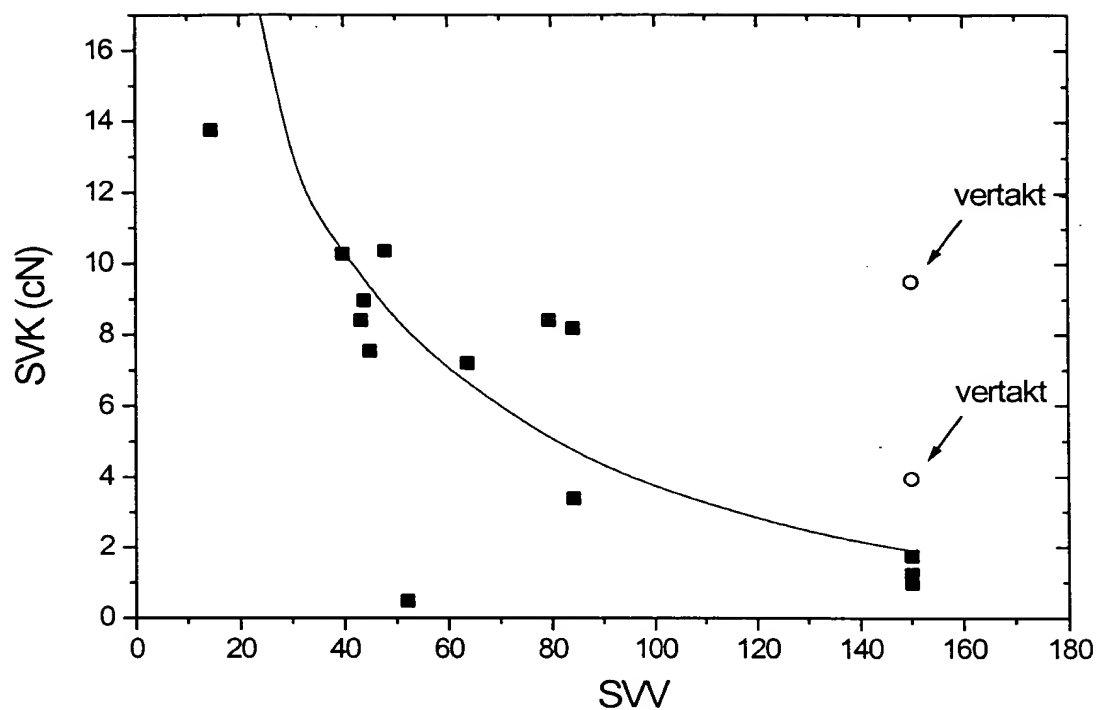


Figuur 8



10 10 8 19

Figuur 9.



■ : lineair polyamide ; ○ : vertakt polyamide volgens de uitvinding.

SVK : smeltverstrekkkracht

SVV : smeltverstrekkgraad